

①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 198 32 625 A 1**

⑤ Int. Cl.<sup>7</sup>:  
**B 01 J 35/02**  
C 01 B 3/40

⑳ Aktenzeichen: 198 32 625.4  
㉔ Anmeldetag: 21. 7. 1998  
㉕ Offenlegungstag: 3. 2. 2000

DE 198 32 625 A 1

㉑ Anmelder:  
DBB Fuel Cell Engines GmbH, 73230 Kirchheim, DE

㉒ Erfinder:  
Heil, Dietmar, Dipl.-Ing., 88477 Schwendi, DE;  
Schüssler, Martin, Dipl.-Phys., 89077 Ulm, DE;  
Lamla, Oskar, Dipl.-Ing. (FH), 73266 Bissingen, DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:  
DE-OS 25 07 937  
US 43 96 480

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Verfahren zur Herstellung eines Stapelreaktors und Katalysatorscheibe für einen Stapelreaktor

⑤⑦ Zur Herstellung eines Stapelreaktors zur Wasserstoffherzeugung aus Kohlenwasserstoffen werden mehrere aus porösen Katalysatormaterial gepreßte Katalysatorscheiben aufeinandergestapelt und gemeinsam unter Druckbeaufschlagung gesintert. Zur Ausbildung besonders dichter Fügestellen verfügen die Katalysatorscheiben über im Bereich des Kontaktes mit einer benachbarten Katalysatorscheibe ausgebildete Vorsprünge. In der Katalysatorscheibe ausgebildete oder durch zwei benachbarte Katalysatorscheiben gebildete Hohlräume weisen eine Einrichtung zum Stützen der Hohlräume auf, beispielsweise ein in den Hohlraum eingebrachtes Kupfer-Gitternetz, das wenigstens teilweise mit einer Metallfolie bedeckt sein kann, oder auf die Katalysatorscheibe aufgepreßte Stützstege.

DE 198 32 625 A 1



Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines Stapelreaktors zur Wasserstoffherzeugung aus Kohlenwasserstoffen aus einer Mehrzahl von aufeinandergestapelten Katalysatorscheiben sowie eine insbesondere zur Herstellung eines derartigen Stapelreaktors geeignete Katalysatorscheibe.

Aus der deutschen Patentanmeldung mit dem Aktenzeichen 197 43 673.0 derselben Anmelderin ist ein derartiger, aus aufeinandergestapelten Katalysatorscheiben gebildeter Stapelreaktor bekannt. Zur Herstellung des Stapelreaktors wird aus mindestens einem Katalysatorpulver durch Verpressen eine einen Formkörper (Katalysatorscheibe) bildende dünne und stark komprimierte Schicht gebildet, wobei dem Katalysatorpulver Kupferpulver, insbesondere dendritisches Kupfer, beigemischt wird. Im Anschluß an das Verpressen wird der Formkörper einer Sinterung unterzogen und anschließend werden die einzelnen Katalysatorscheiben aufeinandergestapelt und zu einem Stapelreaktor verbunden. Bei dem Verbinden der einzelnen Katalysatorscheiben muß auf eine dichte Ausbildung der Fugestellen zwischen den einzelnen Katalysatorscheiben geachtet werden. Als Fügeverfahren bei hochdichten Keramiken sind Kleben, Schweißen, Löten und Klemmen bekannt. Im vorliegenden Falle einer porösen Katalysatorscheibe können diese bekannten Fügeverfahren nur zum Teil angewendet werden.

Ausgehend hiervon liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung eines Stapelreaktors der eingangs genannten Art bereitzustellen, das eine besonders einfache und kostengünstige Herstellung eines kompakt aufgebauten Stapelreaktors ermöglicht, bei dem das aktive Volumen der Katalysatorscheiben nicht oder nur wenig verringert wird und eine besonders dichte Ausgestaltung der Fugestellen erreicht wird. Des weiteren liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine Scheibe aus Katalysatormaterial zum Aufbau eines derartigen Stapelreaktors bereitzustellen.

Zur Lösung dieser Aufgabe wird ein Verfahren zur Herstellung eines Stapelreaktors mit den Merkmalen des Anspruchs 1 vorgeschlagen. Demnach erfolgt ein Sintern der Katalysatorscheiben im Grünlingszustand, d. h. im Anschluß an das Verpressen, gemeinsam erst in gestapeltem Zustand. Durch das gemeinsame Sintern wird eine dichte Verbindung der einzelnen Katalysatorscheiben erreicht. Da das Sintern aller Katalysatorscheiben gemeinsam erfolgt und nicht mehr einzeln, wie es aus dem Stand der Technik bekannt ist, können Arbeitsgänge eingespart werden, so daß das erfindungsgemäße Verfahren einfacher und kostengünstiger durchführbar ist.

In Ausgestaltung der Erfindung erfolgt das Sintern der Katalysatorscheiben unter vorbestimmter Druckbeaufschlagung. Durch dieses erfindungsgemäße Preßsintern wird eine besonders gute Verbindung der Katalysatorscheiben erzielt. Vorteilhafterweise wird die Druckbeaufschlagung während des gesamten Sintervorgangs aufrechterhalten.

Die vorbestimmte Druckbeaufschlagung der Katalysatorscheiben während des Sinterns beträgt vorteilhafterweise zwischen 2 und 20 N/mm<sup>2</sup>, bevorzugterweise zwischen 5 und 15 N/mm<sup>2</sup>.

Zur weiteren Lösung der Erfindung wird eine Katalysatorscheibe mit den Merkmalen des Anspruchs 6 vorgeschlagen. Demnach weist die Katalysatorscheibe im Bereich des Kontaktes mit einer benachbarten Katalysatorscheibe Vorsprünge zur Ausbildung von Fugestellen auf. Beim Aufeinanderstapeln der Katalysatorscheiben im Grünlingszustand kommen die Katalysatorscheiben somit nicht mehr flächig aufeinander zu liegen, sondern stehen an den umlaufend oder unterbrochen ausgebildeten Vorsprüngen aufeinander.

Mit dieser Ausgestaltung ist es möglich, zwischen den einzelnen Katalysatorscheiben beispielsweise als Kanäle dienende Hohlräume zu gestalten. Da sich der Druck, unter dem die Katalysatorscheiben aufeinander aufliegen nun nicht mehr auf die gesamte Fläche sondern nur auf die ausgebildeten Vorsprünge begrenzt, wird eine verbesserte Qualität der Fugestelle zwischen den Katalysatorscheiben nach dem Sintern erreicht.

In besonders vorteilhafter Ausgestaltung der Erfindung weisen in der Katalysatorscheibe ausgebildete oder durch zwei benachbarte Katalysatorscheiben gebildete Hohlräume, wie Verteiler- und Sammelkanäle, eine Einrichtung zum Stützen der Hohlräume auf. Durch diese Maßnahme wird eine Verformung der Katalysatorscheibe(n) während des Preßsinterns vermieden.

In Ausgestaltung der Erfindung ist die Einrichtung zum Stützen ein Kupfer-Gitternetz, das vorteilhafterweise wenigstens teilweise mit einem Metallblech bedeckt ist.

In anderer, bevorzugter Ausgestaltung der Erfindung besteht die Einrichtung zum Stützen aus auf die Katalysatorscheibe aufgepreßten Stegen. Durch diese Maßnahme wird die Konstruktion vereinfacht und der Fertigungsaufwand minimiert, da keine separaten Teile mehr in bzw. zwischen die Katalysatorscheiben eingefügt werden müssen.

Zur weiteren Lösung der der Erfindung zugrundeliegenden Aufgabe wird gemäß Anspruch 11 ein Stapelreaktor zur Wasserstoffherzeugung aus Kohlenwasserstoffen vorgeschlagen, der aus einer Mehrzahl von erfindungsgemäßen Katalysatorscheiben durch Stapeln und Preßsintern gebildet ist.

Die Erfindung ist anhand von Ausführungsbeispielen in der Zeichnung schematisch dargestellt und wird im folgenden unter Bezugnahme auf die Zeichnung näher erläutert.

Fig. 1 zeigt in seitlicher Darstellung einen Schnitt durch eine erfindungsgemäße Katalysatorscheibe.

Fig. 2 zeigt in seitlicher Darstellung einen Schnitt durch einen aus mehreren aufeinandergestapelten erfindungsgemäßen Katalysatorscheiben gebildeten Stapelreaktor vor dem Preßsintern.

Fig. 3 zeigt im Ausschnitt und in seitlicher Darstellung einen Schnitt durch ein zweites Ausführungsbeispiel eines aus mehreren aufeinandergestapelten erfindungsgemäßen Katalysatorscheiben gebildeten Stapelreaktors.

Fig. 1 zeigt in seitlicher Darstellung einen Schnitt durch eine erfindungsgemäße Scheibe 10 aus Katalysatormaterial im Grünlingszustand, nachfolgend der Einfachheit als Katalysatorscheibe bezeichnet. Bei der Katalysatorscheibe 10 handelt es sich um eine aus mindestens einem Katalysatorpulver durch Verpressen einen Formkörper bildende dünne und stark komprimierte Schicht, wie sie in der deutschen Patentanmeldung mit dem Aktenzeichen 197 43 673.0 beschrieben ist. Dieser Formkörper verfügt über einen mittig angeordneten Durchbruch 11 sowie über an den Innen- und Außenrändern ausgebildete Vorsprünge 12a, 12b.

Wie im Zusammenhang mit Fig. 2 ersichtlich ist, wird durch alternierendes Aufeinanderstapeln mehrerer um jeweils 180° gedrehter Katalysatorscheiben 10 eine Grundstruktur für einen Stapelreaktor 20 aufgebaut, in dem die Vorsprünge 12a bzw. 12b benachbarter Katalysatorscheiben 10 jeweils aufeinander zu liegen kommen. Die als Fugestellen bezeichnete Kontakte zwischen den einzelnen Katalysatorscheiben 10 sind mit dem Bezugszeichen 18 versehen.

Aufgrund der Vorsprünge 12a, 12b liegen die Flächen der Katalysatorscheiben 10 beabstandet zueinander, so daß zwischen den einzelnen Katalysatorscheiben 10 Hohlräume gebildet, die mit Gitternetzen 16 als Stützeinrichtung ausgefüllt sind.

In dem in der Fig. 2 dargestellten Ausbildungsbeispiel wird die Struktur des Stapelreaktors 20 nach unten von einer



Katalysatorscheibe 10' abgeschlossen, die mittig durchgehend abgeschlossen ist (Bezugszeichen 14).

Zur Ausbildung des Stapelreaktors werden die aufeinander gestapelten Katalysatorscheiben 10 unter Druckbeaufschlagung P gemeinsam gesintert. Durch dieses erfindungsgemäße Sintern unter Druckbeaufschlagung bilden sich Fügestellen 18 zwischen den Katalysatorscheiben 10 aus, die im Verhältnis zu dem porösen Körper der Katalysatorscheiben 10 dicht sind.

Das Zusammensintern kann weiter unterstützt werden, indem die Preßhaut an den Fügestellen 18, die beim Preßvorgang entsteht, durch Aufrauen entfernt wird.

Durch das Einbringen der Kupfer-Gitternetze 16 in die Hohlräume zwischen den Katalysatorscheiben 10 als Stützeinrichtung werden die beabstandet zueinander liegenden Bereiche der Katalysatorscheiben 10 unterstützt, so daß während des Sinterprozesses keine Verformungen auftreten können.

Die Vorsprünge 12a, 12b können während des Preßvorganges der Katalysatorscheibe höher verdichtet werden, wodurch die Dichtigkeit der daraus resultierenden Fügestelle weiter verbessert wird.

Fig. 3 zeigt in seitlicher Schnittdarstellung einen Ausschnitt aus einem Stapelreaktor 20', der analog zu dem in Fig. 2 dargestellten Stapelreaktor aufgebaut ist. Im Unterschied zu dem Stapelreaktor 20 der Fig. 2 sind in die Hohlräume 15 zwischen den Katalysatorscheiben 10 als Stützeinrichtungen Gitternetze 16 eingebracht. Die Edelstahlbleche 17 weisen eine Dicke von ca. 0,2 mm auf, die im Bereich der Vorsprünge 12a, 12b teilweise mit Metallblechen 17 aus Edelstahl bedeckt sind. Die Edelstahlbleche 17 entsprechen in ihrem Querschnitt dem Querschnitt der Vorsprünge 12a, 12b bzw. der Fügestellen 18, so daß in jeder Schicht die gleichen Anpreßdrücke herrschen.

Selbstverständlich handelt es sich bei den dargestellten und beschriebenen Katalysatorscheiben und Stapelreaktoren um Ausführungsbeispiele, die den Umfang der beanspruchten Erfindung nicht beschränken. So ist es möglich, die Stützeinrichtungen zum Abstützen der Bereiche der Katalysatorscheiben, die an Hohlräume angrenzen, einteilig mit der Katalysatorscheibe auszubilden. Dazu werden Stege auf die Katalysatorscheiben aufgepreßt, die vorteilhafterweise im wesentlichen senkrecht von der Katalysatorscheibe abstehen und deren Länge der einfachen oder doppelten Höhe der Vorsprünge 12a, 12b entspricht.

Die Erfindung ist auch nicht auf die dargestellte Anordnung der Vorsprünge 12a, 12b beschränkt. Je nach gewünschter Geometrie der Hohlräume in dem Stapelreaktor sind beliebige Anordnungen der Vorsprünge möglich. Auch der dargestellte Aufbau des Stapelreaktors durch alternierendes Stapeln von jeweils um 180° gedrehten Katalysatorscheiben ist natürlich variierbar.

Abschließend sei angemerkt, daß der Begriff "Katalysatorscheibe" in dieser Anmeldung sowohl den gepreßten Formkörper im Grünlingszustand als auch den einem Sinterprozeß unterzogenen Körper umfaßt.

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines Stapelreaktors (20) zur Wasserstofferzeugung aus Kohlenwasserstoffen aus einer Mehrzahl von aufeinander gestapelten Katalysatorscheiben (10), **dadurch gekennzeichnet**, daß ein Sintern der Katalysatorscheiben (10) gemeinsam erst in gestapeltem Zustand erfolgt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Sintern unter vorbestimmter Druckbeaufschlagung (P) erfolgt.

3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Druckbeaufschlagung (P) während des gesamten Sintervorgangs aufrecht erhalten wird.

4. Verfahren nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Druckbeaufschlagung (P) zwischen 2 und 20 N/mm<sup>2</sup> beträgt.

5. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Druckbeaufschlagung (P) zwischen 5 und 15 N/mm<sup>2</sup> beträgt.

6. Katalysatorscheibe, insbesondere zur Herstellung eines Stapelreaktors (20) zur Wasserstofferzeugung aus Kohlenwasserstoffen, gekennzeichnet durch im Bereich des Kontaktes mit einer benachbarten Katalysatorscheibe (10) ausgebildete Vorsprünge (12a, 12b).

7. Katalysatorscheibe nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß in der Katalysatorscheibe (10) ausgebildete oder durch zwei benachbarte Katalysatorscheiben (10) gebildete Hohlräume (15) eine Einrichtung (16, 17) zum Stützen der Hohlräume aufweisen.

8. Katalysatorscheibe nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Einrichtung zum Stützen ein Kupfer-Gitternetz (16) ist.

9. Katalysatorscheibe nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß das Kupfer-Gitternetz (16) wenigstens teilweise mit einem Metallblech (17) bedeckt ist.

10. Katalysatorscheibe nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Einrichtung zum Stützen auf die Katalysatorscheibe (10) aufgepreßte Stützstege sind.

11. Stapelreaktor zur Wasserstofferzeugung aus Kohlenwasserstoffen, der aus einer Mehrzahl von Katalysatorscheiben (10) nach einem der Ansprüche 6 bis 10 durch Stapeln und Preßsintern gebildet ist.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen



Fig. 1

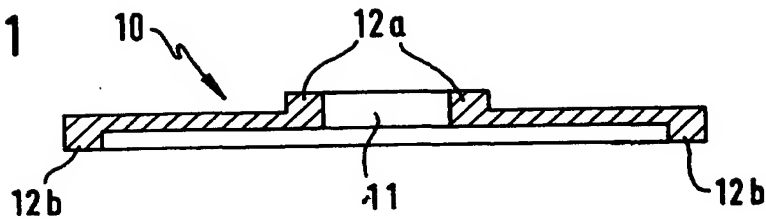


Fig. 2

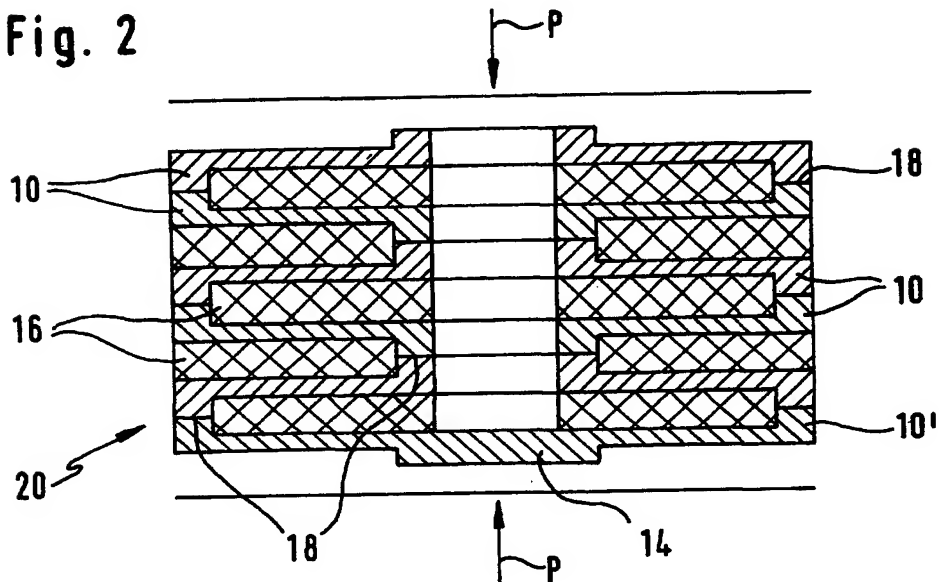


Fig. 3

